

灌液充填層における 液ホールドアップと電気抵抗率

牛 明愷*・秋山 友宏*²・高橋 礼二郎*²・八木 順一郎*²

Liquid Holdup and Electric Resistivity in an Irrigated Packed Bed

Ming kai NIU, Tomohiro AKIYAMA, Reijiro TAKAHASHI and Jun-ichiro YAGI

Synopsis : Liquid holdup and electric resistivity in an irrigated packed bed for scrap melting with a high-frequency induction furnace was examined by using model experiments. In the measurement of liquid holdups, the contact angle between liquid and particles in the packed bed was controlled above 90°, and the inner wall of the packed bed was lined with a sheet of regularly arranged hemispherical convexity for eliminating wall effect. In the measurement of electric resistivity, molten wood's metal was irrigated to packed beds of graphite or iron particles. As the results, two empirical formulate were obtained as follows ;

For static and dynamic holdups

$$\varepsilon_{l,s} = 0.181 C p_m^{-0.458} G a_m^{-0.0218}, \quad \varepsilon_{l,d} = 1.58 \times 10^5 R e_m^{0.268} C p_m^{-2.16} G a_m^{-0.526}$$

For electric resistivity

$$\rho_e = 1.92 \left[\frac{1}{3} \left(\frac{\varepsilon_s}{\rho_s} + \frac{\varepsilon_l}{\rho_l} \right) + \frac{2}{3} \frac{1}{\varepsilon_s \rho_s + \varepsilon_l \rho_l} \right]^{-0.819} \left[N \frac{\varepsilon_s}{d_p/L} \exp \left(\frac{\varepsilon_s - 1}{\varepsilon_l} \right) \right]^{-0.243}$$

Key words : ironmaking ; irrigation ; packed bed ; holdup ; electric resistivity ; wall effect ; wood's metal.

1. 緒言

コークス充填層型高周波溶解炉¹⁾は高品位鋳物鉄製造プロセスとして近年注目されており、その操業においては工場内で発生するスクラップが原料として投入される。炉内においてはFig. 1に示すようにコークス間を鉄鉄が流下し、コークス同士の接触点近傍では鉄鉄が静的に滞留する。スクラップ溶解時にはこれら液ホールドアップとその有効電気抵抗は非定常に変動する。そのため、印加電力を一定とする溶解炉の操業において、印加電流と印加電圧が大きく変化することになる。この炉内現象を解明するには、充填層の電気抵抗率と液ホールドアップの基礎的な関係を明らかにし、定量化することが総合モデルの開発においてきわめて重要となる。

充填層内の液ホールドアップに関する研究²⁻⁵⁾は多数報告されているが、ほとんどが化学工業の分野を対象としたものであり、製鉄業に関するものは数少なく十分に解明されているとは言い難い。例えば、液体流速や濡れ特性の条件が製鉄プロセスと大きく異なるため、対象としているコー

クス充填層型高周波溶解炉内の解析に適用できないことが指摘されている⁶⁾。

充填層の電気抵抗については充填粒子と流体の複合体と仮定したEuckenの式⁷⁾または充填構造を考慮して充填層を擬均一系と仮定したRussellの式⁸⁾やDul'nev-Zarichnyak⁹⁾の式が報告されている。しかしながら、ここで対象として

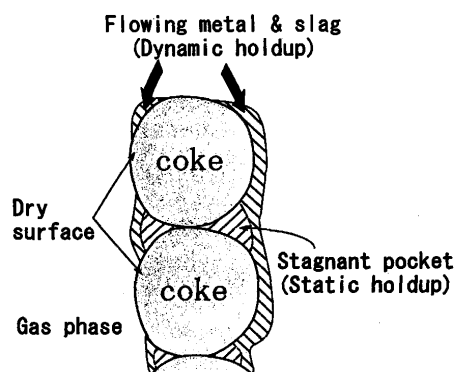


Fig. 1. Schematic representation of an irrigated packed bed.

平成 8 年 2 月 22 日 受付 平成 8 年 4 月 12 日 受理 (Received on Feb. 22, 1996; Accepted on Apr. 12, 1996)

* 東北大学大学院生 (Graduate Student, Tohoku University, 2-1-1 Katahira Aoba-ku Sendai 980-77)

* 2 東北大学素材工学研究所 (Institute for Advanced Materials Processing, Tohoku University)

いる気、液、固体の三相充填層では液体のホールドアップ、粒子の種類および粒子径に依存する粒子間の接触点が相互に関連をもっており、これら従来の充填層の有効電気抵抗モデルの概念と根本的に異なっている。すなわち、従来の式においては各成分の電気固有抵抗率および空間率に注目して推算式を導出しているが、本系の場合これでは不十分と言える。そのため、高周波が印加され局所的な液体が存在するコークス充填層の電気抵抗と液ホールドアップとの関係を既存の報告から予想することは現状では大きな困難を伴う。

さらに、上記の関係が明確化し、操業条件(印加電流、印加電圧、周波数など)から独立に炉内のホールドアップを決定することができるのなら、誘導炉内状況の液ホールドアップの推定が可能となり、操業条件の予測に極めて有効となる。そのため、本研究でははじめに、電力を印加されていない条件下で液ホールドアップの基礎特性を調査し、ついで液流れと電気抵抗の関係を実験的に解明し、最終的に電気抵抗値から炉内の液ホールドアップを予測できる推算式を導出することを目的とした。実験においては製鉄プロセスの濡れ特性¹⁰⁾に合わせて、固液間の接触角を 90° 以上に制御した条件を設定し、充填層の液ホールドアップを測定した。同時に、低融点のウッド合金を用いて、電子伝導性を持つ黒鉛粒子または鉄球粒子からなる充填層の電気抵抗率と、そのときの液ホールドアップを測定し、両者の関係を考察した。

2. 実験

2.1 液ホールドアップの測定装置

液流れ特性の測定用の灌液充填層実験装置をFig. 2に示す。この装置については濡れ面積測定や壁面効果低減を目的とした前報^{6,11)}において詳細に述べられているので、ここでは概略のみを説明する。この装置は充填層容器本体、液体分散器および液体収集器の三つから構成されている。液体分散器には細粒ガラスビーズ(粒径1mm)を充填しており、供給した液体の均一分散を促進した。液体収集器は等面積となるように同心円状に4等分されており、それぞれ部分的に収集された液体により半径方向の流量分布を測定できるように設計されている。充填層容器本体(内径10cm、高さ40cm)には直径(d_p)10mmのアルミナ球またはガラス球をできるだけ密充填となるように軽く振動させながら充填した。

また、壁面近傍の局所的な高空間率が引き起こす偏流現象の発生を回避するために、充填粒子と直径が同じ半球(10mm ϕ)を千鳥状に配置したシート(肉厚0.05mm)を壁面に内張りした。このシートの効果を確認するために、半径方向の空間率分布(Fig. 3参照)と液流れ特性(Fig. 4参照)を測定した。その結果、壁ぎわの空間率の上昇は押さえられるため、液体はほぼ半径方向に均一に $\pm 3\%$ 以内で流れて

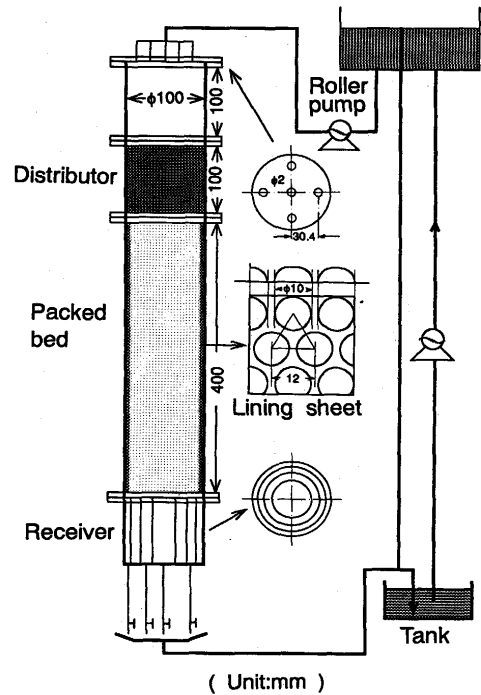


Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus for measurement of liquid holdup in a packed bed.

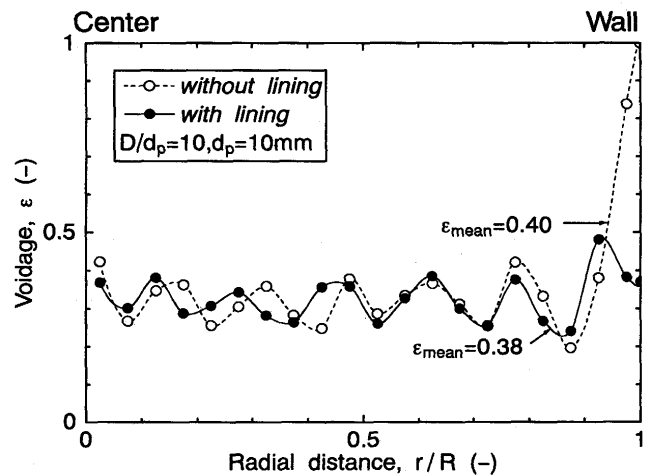


Fig. 3. Radial distribution of voidage in a packed bed with/without hemispherical lining.

いることを確認した。また、従来の充填層における液流れの研究では、金網を底面として使用している場合¹²⁾が多い。しかし、これにより流れに抵抗が生じ、層内の流れの状況に影響を及ぼすことが懸念される。そのため、本実験では充填層底面において、アルミナ粒子同士を強力接着剤で点接触到に近い状態で接着し、金網を使用しないことにした。

本実験では液の排出流速が定常状態に到達した時点で、液体の供給を瞬時に停止し、その後排出した液体の体積分率を動的ホールドアップ($\epsilon_{l,d}$)とし、充填層内に残留してい

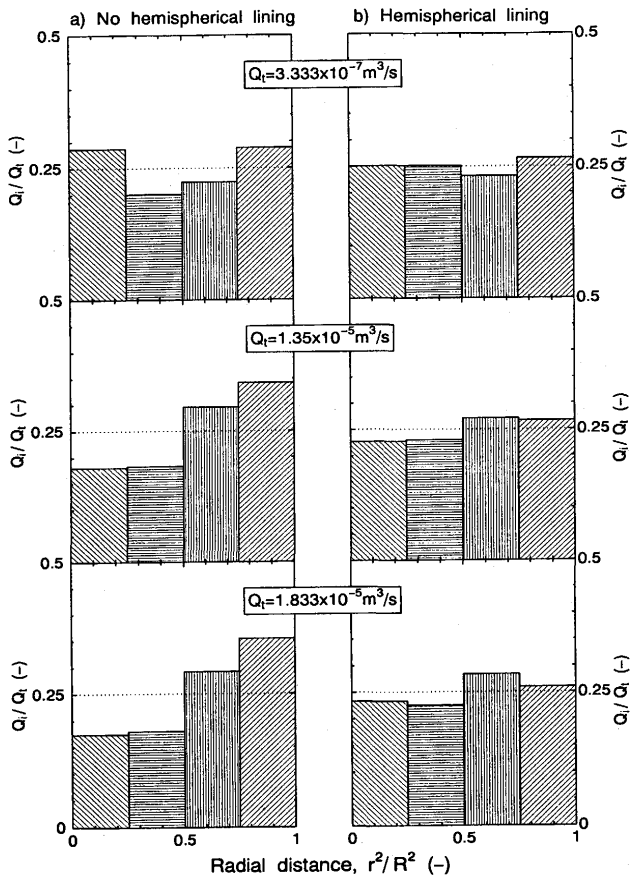


Fig. 4. Radial distribution of liquid flow rate in the outlet with/without hemispherical lining.

Table 1. Physical properties of liquids (30 ~ 45 mass% CaCl₂ + 0.005 mass% Rhodamine B) and Wood's metal used in the experiments.

Concentration (mass%)	30	35	40	45	Wood's metal	Metal	Slag
Contact angle (Degree)	103.3	109.1	116.7	121.0	120	125	105
Surface tension (N/m)	0.0866	0.0901	0.0931	0.0967	0.44	1.1	0.47
Viscosity (Pa·s)	0.0037	0.0060	0.0098	0.0179	0.002	0.005	0.3
Density (kg/m ³)	1286	1334	1390	1440	9680	6600	2500

た液体の体積分率を静的ホールドアップ($\epsilon_{1,s}$)と定義した。 $\epsilon_{1,s}$ は乾燥前後の重量変化から評価し、両者を合わせて液の全ホールドアップ(ϵ_1)とした。また、供給液体は製鉄プロセスの接触角と類似する塩化カルシウム水溶液を使用した⁶⁾。充填層内の濡れ特性を長時間均一に保持するために、粒子表面および壁の内張り表面に濡れ低減剤(Alcohol-Silicones-Acid, 米国特許3579540)を塗布した。水溶液の物性値をTable 1に示す。これらの測定法は前報⁹⁾と同様である。

2・2 電気抵抗の測定装置

端末効果を低減するために充填層の横の長さと同断面代表

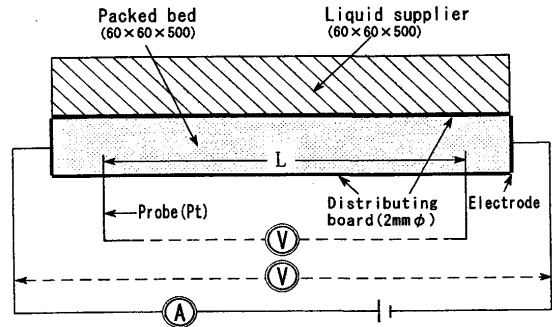


Fig. 5. Schematic diagram of experimental apparatus for measurement of electric resistivity.

長さの比が8倍以上になるように(Fig. 5参照)灌液充填層の電気抵抗測定用の実験装置を作製した。これは両側に銅板電極付きの亚克力製充填層容器(長さ500mm, 高さ60mm, 奥行き30~60mm), 液の供給装置(充填装置と同材質, 同サイズ)および測定系から構成されている。充填粒子としては固体の電気伝導性の影響を調べるために黒鉛のほか鉄球も使用した。黒鉛および鉄球の粒径はそれぞれ1~5mmおよび1.5mmとし、液体としては溶融したウッド合金(Bi: 50%, Sn: 12.5%, Pb: 25%, Cd: 12.5%, 融点: 73°C, 供給液温度: 100°C)を使用した。充填層へ液体を均一に供給するため、10mm間隔で格子状に直径2mmの穴を持つ分散板を液供給装置と充填層の間に設置した。また、電極と充填粒子および充填粒子間の接触電気抵抗による発熱現象を避けるため、充填層の銅板電極間にかかる直流電圧は0.05mV以下にした。

実験では、液供給装置における液面高さを制御することによりウッド合金溶融液の流量を修正レイノルズ数0.1~46.5の範囲内で変化させた。同時に電圧をかけ液体が定常に流下する状態下で、2本の白金プローブ(2mmφ)を長軸方向にL=300, 350, 400, 450, および500mmの間隔をあけて充填層に接触させ、4電極法により充填層の有効電気抵抗率を評価した。ここでプローブ間の距離を変えて測定を行うのは(1)式に示す関係より、電極と充填粒子間に生じた接触電気抵抗の影響を除去するためである。

$$\rho_{dL} = \frac{\Delta U}{I} \frac{S}{\Delta L} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 ρ_{dL} は充填層の電気抵抗率[Ω·m], ΔU は電圧差[V], ΔL は長さ方向のプローブ間距離[m]である。また、その際に充填層の液ホールドアップは2・1節に述べた測定方法により同時に評価した。

3. 結果と考察

3・1 液ホールドアップ

Fig. 6は本実験で測定した動的および静的ホールドアップ

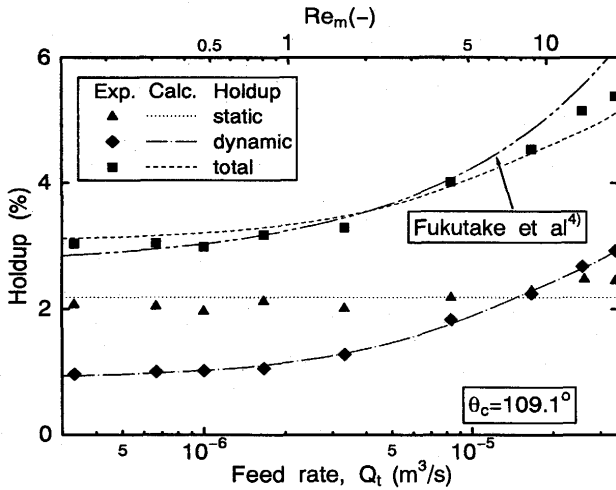


Fig. 6. Experimental results of static holdup, dynamic holdup and total holdup with feed rate.

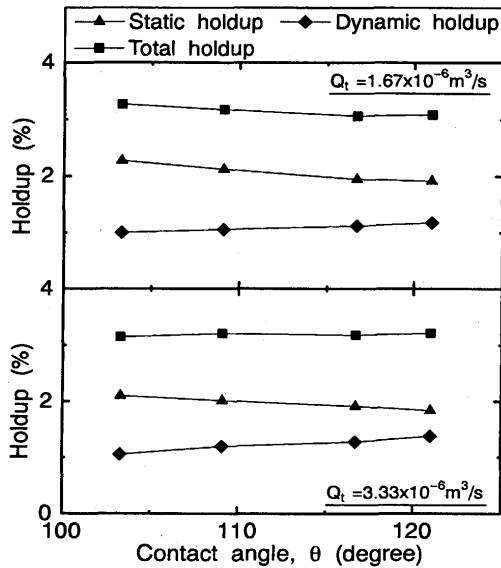


Fig. 7. Effect of the contact angle on liquid holdups.

プの流量依存性を示す。接触角109.1°のCaCl₂水溶液を用いて液の供給速度を変化させた場合、静的ホールドアップは液流量に依存せず、ほぼ一定の値を示した。これに対して、動的ホールドアップは液体の供給量の増加とともに増加する傾向を示した。静的ホールドアップは静止充填層中に保持される液であり、充填構造が決定すれば物理的に決まるため、液流量の影響が少なかったと考えられる。

固液間の接触角が液ホールドアップに及ぼす影響をFig. 7に示す。接触角を90°以上とした本実験条件下では流量を1.67×10⁻⁶m³/sおよび3.33×10⁻⁶m³/sとした場合、接触角が増大するにつれて、静的ホールドアップは減少し、逆に動的ホールドアップは増加する傾向があった。結果として全ホールドアップは3.0~3.3%とほぼ一定であった。これ

は固液間の接触角が大きくなれば濡れ面積は減少し⁹⁾、液体が充填粒子表面に保持される力が減少するため、静的ホールドアップが減少したものと推察される。

また、従来の液ホールドアップの研究成果⁵⁾によると、高炉内の滴下帯を対象にした液ホールドアップの推定値には2倍程度の差が見られる。このばらつきは液ホールドアップの定義、取り扱った液体の物性およびその流量範囲の違いにより生じたものと判断される。そのうち、福武ら⁴⁾は高炉の滴下帯に相似させた灌液充填層の液の全ホールドアップを測定することにより、実験式として整理した。この研究で採用された実験条件は本実験条件と類似しており、福武らの式による計算値もFig. 6に併示している。両者の全ホールドアップは傾向的によく一致していた。

ここで、 $\epsilon_{1,s}$ および $\epsilon_{1,d}$ に影響を及ぼす因子を考察し次元解析すると、(2a)、(2b)および(2c)式の関係式が得られる。

$$\epsilon_{1,s} = C_1 C_{p_m}^{c_2} G a_m^{c_3} \dots \dots \dots (2a)$$

$$\epsilon_{1,d} = C_4 R e_m^{c_5} C_{p_m}^{c_6} G a_m^{c_7} \dots \dots \dots (2b)$$

$$\epsilon_1 = \epsilon_{1,s} + \epsilon_{1,d} \dots \dots \dots (2c)$$

関連する無次元数は修正キャピラリー数(C_{p_m})、修正ガリレオ数($G a_m$)および修正レイノルズ数($R e_m$)であり、(3)式で与えられる。

$$C_{p_m} = \frac{\rho^2 g d_p^2}{\sigma \epsilon_s^2}, \quad G a_m = \frac{\rho^2 g d_p^3}{\mu^2 \epsilon_s^3}, \quad R e_m = \frac{\rho u d_p}{\mu \epsilon_s} \dots (3)$$

ついて、すべての実験データ15点を使用して最小二乗法により係数 $C_1 \sim C_7$ を求めた。得られた実験式およびその適用範囲は次の通りである。

$$\epsilon_{1,s} = 0.181 C_{p_m}^{-0.458} G a_m^{-0.0218} \dots \dots \dots (4a)$$

$$\epsilon_{1,d} = 1.58 \times 10^5 R e_m^{0.268} C_{p_m}^{-2.16} G a_m^{-0.526} \dots \dots \dots (4b)$$

$$(38.03 < C_{p_m} < 38.31, \quad 2.7 \times 10^5 < G a_m < 5.0 \times 10^6, \quad 0.157 < R e_m < 15.66)$$

この式の再現性を検証するために、Fig. 6に計算値を併示した。計算値と実測値に関してほぼ満足のいく一致が見られた。ちなみに高炉内における無次元数の範囲は $C_{p_m} = 47.7 \sim 51.8$, $G a_m = 1.9 \times 10^4 \sim 4.5 \times 10^8$, $R e_m = 0.02 \sim 3.1$ であり¹⁰⁾、対象とする高周波炉もほぼ同じ条件である。したがって、溶解炉内の ϵ_1 は3.0~3.7%、その内 $\epsilon_{1,s}$ は2.1%と推定できる。

3・2 電気抵抗率

はじめに、液体を流さない状態で均一粒子充填層の有効電気抵抗率を測定した。粒子径が及ぼす影響を確認するため、黒鉛を使用して粒径を変化させた場合の電気抵抗率を測定した。結果をFig. 8に示す。充填層の電気抵抗率は粒径の減少とともに、ほぼ直線的に増加する傾向があった。これは黒鉛が良電導体であり、充填層の電気抵抗は黒鉛粒子間の接点の数に依存するためと考えられる。緻密な黒

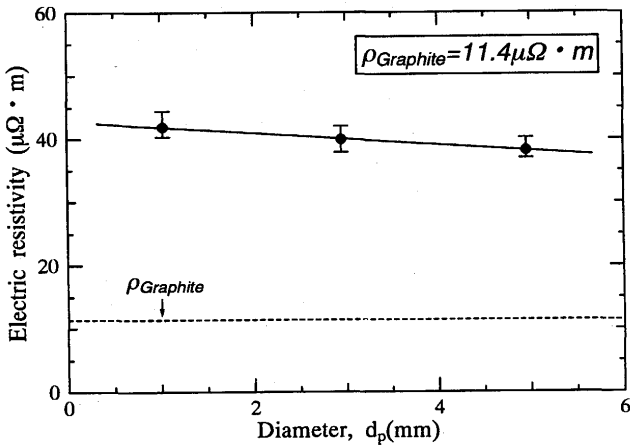


Fig. 8. Influence of mean diameter of graphite packings on electric resistivity in a packed bed.

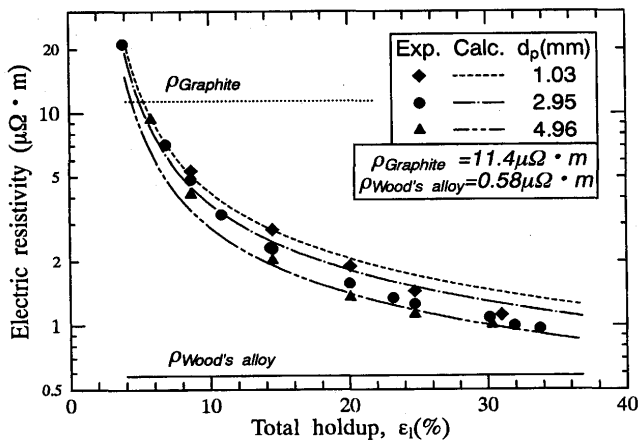


Fig. 9. Relation between electric resistivity and total liquid holdup in a packed bed with graphite particles.

鉛の値に比べ、充填層の電気抵抗率は約3.5倍であった。

Fig. 9はウッド合金溶融液の流量および黒鉛粒径を変化させた場合の電気抵抗率とホールドアップの関係をまとめたものである。灌液充填層の電気抵抗率は、いずれも20%程度までのホールドアップの増加とともに急激に減少した後、20%以上では徐々に減少した。その後、完全に液体が満たされた充填層、すなわち、 ϵ_l が30~34%のときの電気抵抗率に到達した。これは粒子同士の接触電気抵抗は大きい、いったん灌液がつながり、電気的なネットワークができてしまうと、それ以上の液ホールドアップは電気抵抗率の減少にそれほど大きくは寄与しないことを意味している。また、ウッド合金の電気抵抗率に近い鉄球を充填した場合の灌液充填層の電気抵抗の変化も測定した。結果をFig. 10に示す。充填粒子の種類を変えても、傾向的にはFig. 9に示した結果と同様であった。これらの結果は灌液充填層の電気抵抗は液ホールドアップの増加とともに減少し、その影響

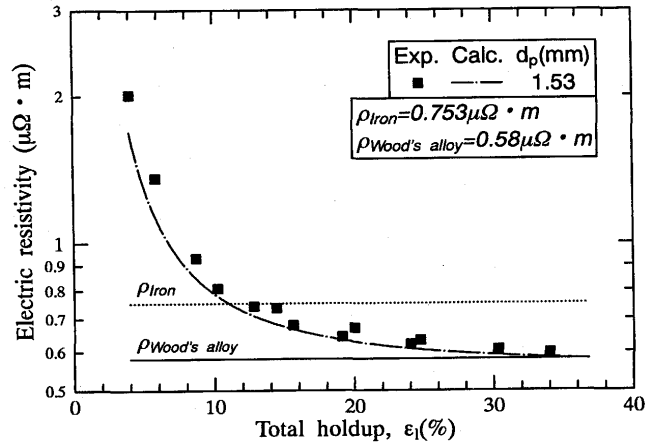


Fig. 10. Relation between electric resistivity and total liquid holdup in a packed bed with iron particles.

は直線的ではなく、指数関数的であることを示唆した。また、液ホールドアップの推測値は前節で導出した推算式で±5.6%の誤差範囲で一致した。

3.3 液ホールドアップと電気抵抗率の関係

充填層の熱および電気の抵抗の記述は直列分布、並列分布およびランダム分布を仮定して導出した三つの式に分類できる¹³⁾。一般には、その有効電気抵抗率は各成分の固有電気抵抗率と空間率の関数として表されている。しかし、いずれも不規則に分散している固気二相系の多孔質材料の電気抵抗を想定しており、これらの式で前節の測定で明らかとなった粒子同士の接触電気抵抗や粒径の影響を考慮することは不可能である。そこで、ここでは実測データに基づき電気抵抗率と液ホールドアップの関係を定式化することを試みた。

Dul'nev-Zarichnyak⁹⁾は固体と気体の2相からなる多孔質体の電気抵抗率について、電気抵抗の直列と並列を考え両者の比を仮定して、(5)式を報告している。

$$\rho_e^{-1} = \frac{1}{3} \left(\frac{\epsilon_s}{\rho_s} + \frac{\epsilon_g}{\rho_g} \right) + \frac{2}{3} \frac{1}{\epsilon_s \rho_s + \epsilon_g \rho_g} \dots \dots \dots (5)$$

本研究で対象とする充填層の電気抵抗に関する物理的現象を実験結果から判断すると、充填粒子間の接触により生じる電気抵抗およびその接触点の数を考慮する必要がある。ここでは、(5)式の結果を三相充填相に応用した(6)式により電気抵抗率と液ホールドアップの関係式を予想した。

$$\rho_e = A \left[\frac{1}{3} \left(\frac{\epsilon_s}{\rho_s} + \frac{\epsilon_l}{\rho_l} \right) + \frac{2}{3} \frac{1}{\epsilon_s \rho_s + \epsilon_l \rho_l} \right]^B \left[N \frac{\epsilon_s}{d_p/L} \exp \left(\frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_l} \right) \right]^C \dots \dots \dots (6)$$

ここで、A, B, Cは係数、Nは充填粒子の接触数である。充填層内粒子の立方体配列、体心配列および面心配列のときの接触数からランダム配列の場合を推定すると、Nの値¹⁴⁾

は $(\epsilon_s - \pi/6)/(0.5550 - 0.7017\epsilon_s) + 6$ となる。

(6)式を用いて、実験データとの偏差が最小となるように最小二乗法により係数を決めた。得られた電気抵抗率と液ホールドアップの関係は(7)式となる。

$$\rho_e = 1.92 \left[\frac{1}{3} \left(\frac{\epsilon_s}{\rho_s} + \frac{\epsilon_l}{\rho_l} \right) + \frac{2}{3} \frac{1}{\epsilon_s \rho_s + \epsilon_l \rho_l} \right]^{-0.819} \left[N \frac{\epsilon_s}{d_p/L} \exp \left(\frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_l} \right) \right]^{-0.243} \dots \dots \dots (7)$$

(7)式による推算値はFig. 9およびFig. 10に併示した。液体の流量、充填粒径および充填粒子の種類が変わっても、実験値と推算値は傾向的にほぼ一致し、実用的に使用可能であると判断した。

4. 結論

コークス充填層型高周波溶解炉の液流れ現象を解明するために、液ホールドアップと電気抵抗率に着目して研究を行った。はじめに、半球内張りにより偏流を低減できる実験装置を開発し、その装置を用いて液ホールドアップを測定した。その結果、流速の増加とともに、動的ホールドアップは微増し、接触角の増加とともに静的ホールドアップは減少、動的ホールドアップは増大する傾向を示した。さらに、得られた結果に基づいて、動的ホールドアップおよび静的ホールドアップの推算式を導出した。

ついで、液ホールドアップと電気抵抗の関係について検討した。実験では銑鉄のかわりにウッド合金を用いて、黒鉛粒子または鉄球からなる充填層内に種々の速度で液体金属を供給し、有効電気抵抗率と液ホールドアップを測定した。得られた結果は既報の電気抵抗モデルを本実験条件を考慮して修正し、実用に耐え得る半経験式の形で整理した。この式により、印加電力を一定とした実炉の操業において、実炉内の液ホールドアップを電気抵抗から推定することが可能となった。

今後、コークス充填層型高周波炉における液流れおよび

異相間の伝熱などについての解析を行う際、充填層の液ホールドアップおよび電気抵抗率の評価としては(4)式および(7)式を採用する予定である。

最後に、本研究の一部は科学研究費(試験研究B, 07555536)により遂行された。記して謝意を表する。

記号

d_p	: 粒子直径 [m]
g	: 重力加速度 [m/s ²]
I	: 回路の電流 [A]
L	: 電流の流れる方向の単位長さ [m]
S	: 充填層の断面積 [m ²]
u	: 流速 [m/s]
U	: 電圧 [V]
C_{p_m}	: 修正キャピラリー数 $[(\rho^2 g d_p^3)/(\sigma \epsilon_s^2)]$, [-]
Ga_m	: 修正ガリレオ数 $[(\rho^2 g d_p^3)/(\mu^2 \epsilon_s^3)]$, [-]
Re_m	: 修正レイノルズ数 $[(\rho u d_p)/(\mu \epsilon_s)]$, [-]
$\epsilon_l, \epsilon_{l,s}, \epsilon_{l,d}$: 全、静的および動的ホールドアップ
μ	: 粘度 [Pa·s]
ρ	: 密度 [kg/m ³]
$\rho_s, \rho_l, \rho_s, \rho_l$: 気体、固体、液体および充填層の電気抵抗率 [$\mu\Omega \cdot m$]
σ	: 表面張力 [N/m]

文 献

- 1) 橋田榮夫: 工業加熱, 2 (1991), 23.
- 2) H. Shulman, C. Ullrich and N. Walls: AIChE J., 1 (1955), 247.
- 3) P. Mills and M. Dudukovic: AIChE J., 27 (1981), 893.
- 4) 福武 剛, V. Rajakumar: 鉄と鋼, 66 (1980), 1937.
- 5) 杉山 喬, 中川朝之, 芝池秀治, 小田 豊: 鉄と鋼, 73 (1987), 2044.
- 6) 牛 明愷, 秋山友宏, 高橋礼二郎, 八木順一郎: 鉄と鋼, 82 (1996), 647.
- 7) A. Eucken: VDI-Forschungsheft, B3, 1 (1932), 353.
- 8) H. W. Russell: J. Am Ceram. Soc., 18 (1935), 295.
- 9) G. N. Dul'nev and Y. P. Zarichnyak: Heat Trans. Sov. Res., 2 (1970), 89.
- 10) Y. Eto, K. Takeda, S. Miyagawa, S. Taguchi and H. Itaya: ISIJ Int., 33 (1993), 681.
- 11) M. Niu, T. Akiyama, R. Takahashi and J. Yagi: AIChE J., 42 (1996), 1181.
- 12) J. Levec, A. E. Saez and R. G. Carbonell: AIChE J., 32 (1986), 369.
- 13) W. Woodside and J. H. Messmer: J. Appl. Phys., 32 (1961), 1688.
- 14) K.W. Jackson and W.Z. Black: Int. J. Heat Mass Transfer., 26 (1983), 87.